

本資料は1999年3月26日付けで登録区分、  
変更する。

[技術情報室]

## 放射性廃棄物のアスファルト固化処理

(第1報) ビーカ実験による模擬蒸発缶濃縮液のアスファルト固化

1971年3月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

この資料は、社内における検討、周

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

1999



T  
841-71-96  
1971年3月9日

## 放射性廃棄物のアスファルト固化処理

(第1報) ビーカ実験による模擬蒸発缶濃縮液のアスファルト固化

実施責任者	瀬川 猛	( 技術部開発研究室 )
報告者	宮尾英彦	( " )
	水野隆吉	( " )
	武藤英世	( " )

期 間 1970年 4月 1日 ~ 1971年 2月 28日

目 的 放射性廃棄物 (特に蒸発缶濃縮液および凝集沈殿処理で生ずるスラッジ) のアスファルト固化処理技術の開発

### 要 旨

再処理工場の蒸発缶濃縮液および凝集沈殿処理で生ずるスラッジのアスファルト固化処理を目的として、まず蒸発缶濃縮液を用いてビーカ実験を行なった。

アスファルトの種類、加熱温度、加熱時間、模擬廃液 (硝酸ナトリウム溶液) の混合率等によってアスファルトおよびアスファルト混合物の物性 (軟化点、針入度、粘度、比重等) とナトリウム浸出速度がどのように変化するかを調べた。アスファルト混合物からのナトリウム浸出速度は硝酸ナトリウムの混合率30~50%の場合、100日間の平均で約  $5 \times 10^{-5}$  g /  $cm^2 \cdot day$  であった。硝酸ナトリウム60%以上では浸出速度が高くなる。混合物の物性は加熱混合条件によって大巾に変動するため、ビーカ実験の結果から本プラントの場合を推測することは困難である。

## 目 次

1	概 要	1
2	混合脱水試験法について	2
2.1	模擬廃液	2
2.2	かきませ機	2
2.3	加熱装置	2
2.4	混合脱水容器	4
2.5	実験器具の洗浄	4
2.6	その他	5
3	アスファルトの物性試験法	5
3.1	軟化点試験法	5
3.2	針入度試験法	6
3.3	比重測定法	6
3.4	四塩化炭素可溶分試験法	6
3.5	粘度測定法	6
4	試験結果および考察	6
4.1	軟化点	8
4.2	針入度	8
4.3	比 重	8
4.4	粘 度	14
4.5	その他	14
5	アスファルト固化体の浸出試験	14
5.1	浸出試験に用いた試料	18
5.2	試験条件および方法	18
5.3	試験結果および考察	19
6	放射性廃棄物のアスファルト固化に関する文献	24

## 1 概 要

昭和45年度からはじまった「放射性廃棄物のアスファルト固化処理法の開発試験」のピーカ実験の結果について報告する。

アスファルトはシェル石油(株)製のストレートアスファルト mexphalt 40/60, 60/80, 80/100(数字は針入度を表わす)を使用した。水分30%のカチオン系乳化アスファルト MK-2についても予備試験を行なったが、ポット式の混合脱水容器を用いる場合には脱水すべき水分がふえるだけで利点がみられず、逆に混合脱水容器からの溢流を防ぐために注意深い加熱調節が必要であった。ブローンアスファルトについては今後試験を行なうべきであろう。

アスファルト固化処理の対象としては、当面蒸発缶濃縮液と化学沈殿処理工程より生ずるスラッジとが考えられているが、スラッジについては小容量の混合脱水容器に定量的に供給する良い方法がないので蒸発缶濃縮液についてのみ試験を行なった。

アスファルト混合物の評価はおもに軟化点、比重、浸出速度、粘度、混合物の静置観察等により行なった。

ピーカ実験では①国産アスファルトの選定と濃縮液の前処理、②アスファルト混合率と固化体の物性測定、を目的として行なった。その結果次のようなことが言えよう。

- ストレートアスファルト3種類の針入度と浸出速度の間には関係が見られない。
- 針入度の大きいアスファルトの方が粘度が低く輸送しやすいが、加熱混合による物性変化は大きい。
- 混合物の軟化点と浸出速度の間には関係がありそうである。
- 加熱温度、加熱時間とともに空気との接触が大きくなりアスファルトの物性変化に影響する。
- 混合率と浸出速度との間に明確な傾向は認められなかったが、硝酸ソーダ60%以上では浸出速度も高くなる。
- 混合脱水温度と浸出速度の間にもはっきりした傾向が認められなかった。
- 加熱混合条件によってアスファルト混合物の物性が大きく変動してしまうので、ピーカ実験の結果から本プラントの場合の固化体の物性を推測することは危険である。バッチ式のピーカ実験と連続式の本プラント(薄膜蒸発装置)では滞留時間が約2けた違うので物性の変化は相当異なるであろう。

このようにピーカ実験だけでプロセス条件の選定、混合物の評価等を行なうことは不可能であり、パイロットプラントによる試験が必要となる。

最後に、放射性廃棄物のアスファルト固化に関する文献を列記した。これにはまだ入手されていないものも含まれている。

## 2 混合脱水試験法について

### 2.1 模擬試験

再処理工場の中・低レベル廃液蒸発缶濃縮液の主成分は $\text{NaNO}_3$ :  $650\text{g/l}$ ,  $\text{HNO}_3$ :  $<2\text{N}$ , 放射能:  $465\text{rCi/m}^3$ , (現在では設計変更されてこれらの値の $5/8$ になっている。)であるが,  $\text{NaNO}_3$   $650\text{g/l}$ はほとんど飽和溶液であるので, 模擬廃液は $\text{NaNO}_3$   $500\text{g/l}$ の溶液とした。模擬廃液の混合脱水容器への供給は定量ポンプにより約 $2\text{ml/min}$ で加熱装置の電圧とバランスさせた。

2N硝酸の $\text{NaNO}_3$   $500\text{g/l}$ 溶液でも実験を行なったが, アスファルトが硝酸とかなり激しく反応し, アスファルトの流動性はほとんど失われてしまった。このことから硝酸酸性の廃液をアスファルト固化することは不可能である。

### 2.2 かきませ装置

最初, 出力 $50\text{W}$ の回転式かきませ機を用いてアスファルトと $\text{NaNO}_3$ 溶液とを加熱混合したが, 力が弱く十分混合されなかった。次に, 粘性物質のかきませにも適するといわれる往復回転式(翼が $90^\circ$ 往復反転する。島崎製作所製)の出力 $45\text{W}$ のものを使用した。この往復回転式かきませ機は粘度の高い場合でも十分に作動した。しかし, 翼の形状, 混合脱水容器への取り付けによっては $\text{NaNO}_3$ が底部に沈降し, 壁のまわりに大きなかたまりが生成した。

そこで, グリセリンに過マンガン酸カリウムをまぜて各種形状の翼を組み合わせる混合状況を調べた。その結果のおもな様子を第1図に示す。図からわかるように第1図-(g)のような翼の形状と組み合わせが良好な混合状態を示した。かきませ機の混合脱水容器への取り付けは底部にほとんど接触する位までしないと $\text{NaNO}_3$ の沈降がおこる。また, かきませ条件は回転数, 翼の形状, 液量, 粘度等によって変わるので一定に保つことが不可能であった。

### 2.3 加熱装置

アスファルトの加熱にはマントルヒータあるいはリボンヒータを使用した。

マントルヒータ :  $500\text{ml}$ ビーカー用

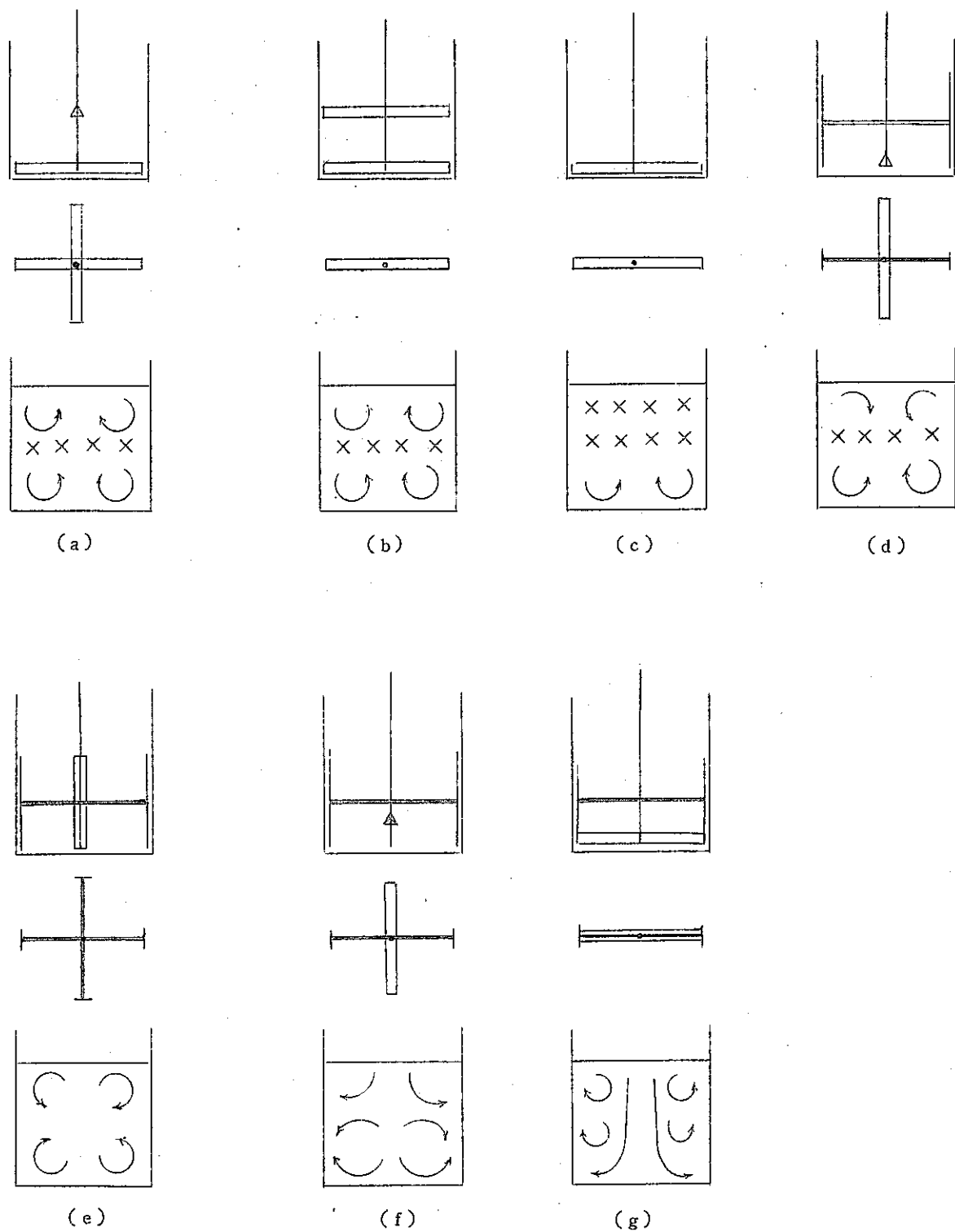
電気容量  $100\text{V}$ ,  $300\text{W}$

自動温度調節器付き

リボンヒータ :  $巾25\text{mm}$ , 長さ $1000\text{mm}$

電気容量  $100\text{V}$ ,  $150\text{W}$

温度のコントロールはスライダックを用いて行なった。リボンヒータを使用する場合には



第1図 翼の形状と混合状態

上に石綿を巻いて保温した。

#### 2.4 混合脱水容器

最初は、500 ml ビーカーと同じ径のステンレス製容器に取っ手をつけて使用した。この方法には液面を見ながらNaNO<sub>3</sub>溶液の供給速度と加熱速度（スライダックによる電圧調整）をコントロールして温度調節ができる反面、激しいかきまぜによりアスファルトが容器の外に飛び散る。このアスファルトの飛び散りを防ぐために、容器にふたをつけて発生する蒸気は、かきまぜ軸および温度計差し込み用の穴を大きくしてそこから抜けるようにした。しかし、容器とふたはねじ止めしただけなので、透き間よりアスファルトが流出してきた。また、液面のコントロールが悪いとアスファルトのふきこぼれが起こった。これと併行して、温度計の代わりにふたにねじ込み式のサーミスタを使用し、かきまぜ軸をパッキンでシールした密閉型の容器を製作した。この装置では発生する蒸気を凝縮器で回収できるようにした。この場合には当然液面が見えないので、給液速度と加熱には十分注意しないと液面が上昇して凝縮器の方へ入り込むことがある。凝縮液にはアスファルトの分解生成物が混入し、凝縮器内で凝集して粘着性油状のかたまりとなって排出されてくるので、凝縮系配管は最初8 mm φから20 mm φに変えた。

#### 2.5 実験器具の洗浄

実験に使用した器具の洗浄にはトリクロルエチレンを使用した。この有機溶剤は難燃性であるが有毒であるので、その取り扱いにはフード内で注意して行なう。トリクロルエチレンの物性を次に示す。

トリクロルエチレン（トリクレン）

化学式	CHCl = CCl <sub>2</sub>
外 観	無色透明液体
におい	ややクロロホルムに似た特異な臭気
比 重 (d <sub>4</sub> <sup>20</sup> )	1.461
蒸気密度	4.54
沸 点	86.9°C (760 mmHg)
発火点	410°C
比 熱	0.23 cal/g・°C (20°C)
蒸発熱	57.2 cal/g (沸点)
爆発性, 引火性	空气中, 室温ではなし
腐蝕性	空気, 水, 日光などにより徐々に分解して酸を生成し金属を侵す。



安定剤を添加したものはほとんど侵さない。合成樹脂製品を一般に溶解または膨潤させる性質をもつ。

毒性 蒸気の吸入，皮膚や粘膜と液の接触，および口からの摂取によって生体に吸収されると中毒作用をあらわし，神経系，肺臓，肝臓，腎臓，皮膚や粘膜，および消化器系に障害を起こす。

トリクロロエチレンと類似した性質のテトラクロロエチレンも使用できる。その他に，可燃性ではあるがクロシンも使用した。クロシンよりもトリクロロエチレンの方が洗浄力は強い。

## 2.6 その他

実験に用いるアスファルトは溶融したものを上皿天秤で原則として200 g採取した。加熱脱水時間は，模擬廢液の添加量に関係なく一定時間加熱を続けるようにした。温度の測定は水銀温度計を用いて行なったが，密閉型の混合脱水装置に対してはふたにねじ込み式のサーミスタを使用した。

アスファルトの熱可塑性は特徴ある物性の1つである。これを利用して，アスファルト混合物を冷凍庫で冷やすと金づちで割れるようになるので，試料内部の観察，四塩化炭素可溶分測定用の試料採取を行なった。

## 3. アスファルトの物性試験法

アスファルトの物性試験法の詳細は，日本工業規格に規定されており，試験項目も広い範囲におよぶが，ここではアスファルト固化処理試験をおこなった場合の必要試験項目のみについてその概要を述べる。

### 3.1 軟化点試験法（環球法）

軟化点はアスファルトの流動性がある限界量に達したときの温度で示されるが，これは，温度変化による可塑性の限界を評価するための重要な資料となる。

直径 $15.9 \pm 0.1 \text{ mm}$ ，高さ $6.4 \pm 0.1 \text{ mm}$ の黄銅製環に試料を充填し，水浴またはグリセリン浴中（軟化点が $80^\circ\text{C}$ 以上の場合）に環台を用いて水平にささえ，試料の中央に鋼製の球（直径 $9.53 \text{ mm}$ ，重量 $3.5 \pm 0.05 \text{ gr}$ ）をおき，浴温を加熱開始後の3分間を除き毎分 $5 \pm 0.5^\circ\text{C}$ の割合で上昇させた時，球の重みで試料が環台の底板（環台から底板の距離 $25.4 \text{ mm}$ ）に触れた時の温度を軟化点として測定する。JIS K 2531 - 1960 参照。

### 3.2 針入度試験法

針入度はアスファルトの変形に対する抵抗性を知るために考案されたものである。

内径55 mm, 深さ32 mmの金属またはガラス製の平底円筒形の容器に試料を満し, その容器を内径110 mm, 深さ60~90 mmのガラス容器に入れ25°C±0.1°Cの恒温水浴中に1~1.5時間静置する。次にガラス製容器に水を満したまま針入度測定器を用い針入度試験用針に100 grの荷重をかけ5秒間試料中に貫入させる。この時, 針が試料中に貫入した深さを1/10 mm単位で表わし針入度として測定する。

J I S K 2808-1961参照。

### 3.3 比重測定法 (ハーバード比重びん法)

加熱溶融した試料を重量既知のハーバード比重びん(直径22 mm, 深さ70 mmの平底円筒形容器, 栓付)のほぼ中ばまで満し, 栓をしてデシケータ中で1時間以上放冷後, 重量を測る。ついで蒸留水を比重びん上半に満たし強く栓をする。これを25±0.5°Cの恒温水槽中に30分以上保持する。つぎに比重びんを水槽から取り出し外側に付着した水を清浄な乾布でぬぐい取り1 mgまで重量を測り, 測定した各々の重量から比重を算出する。J I S K 2249-1961参照。

### 3.4 四塩化炭素可溶分試験法

約2 grの試料を重量既知の三角フラスコ(容量100 ml)に取り正確に重量を測る。つぎに四塩化炭素100 mlでこの試料を溶解し, 密栓をした後冷暗所に12時間以上放置し重量既知の石綿グーテルッポでろ過する。100~125°Cに保った乾燥器中で20分間乾燥させデシケータ中で放冷後, その重量を測り各々の重量から可溶分を算出する。J I S K 2534-1960参照。

### 3.5 粘度測定法

加熱溶融した試料をステンレス製容器(直径42 mm, 高さ120 mm, 平底円筒形)に取り, あらかじめ所定の温度に設定したオイルバス中に保持し, 試料の温度が平衡に達するまで放置する。試料温度が所定の温度に達した時, B型回転粘度計を用い試料の粘度を測定する。

## 4. 試験結果および考察

アスファルトの品質および試験法は, 日本工業規格(J I S)に規定されている。ストレートアスファルトおよびブローンアスファルトのJ I S規定を第1表に示す。

アスファルトの重要な物性のうち軟化点, 針入度, 粘度について加熱かきまぜ操作による変化

第1表 ストレートおよびブローンアスファルトの日本工業規格 (K 2207-1969)

種 類	針 入 度			軟化点 ℃	伸 度		蒸発量 %	蒸発後の針 入 度 % (原針入度 に対して)	四塩化炭 素可溶分 %	引火点 ℃			
	0℃ 200g 60秒	25℃ 100g 5秒	46℃ 50g 5秒		15℃	25℃							
ストレートアスファルト	0~10	—	0以上 10以下	—	55.0	—	—	75以上	99.5 以上	240以上			
	10~20	—	10を越え 20以下	—	以上	—	5以上						
	20~40	—	20を越え 40以下	—	55.0~ 65.0	—	50以上						
	40~60	—	40を越え 60以下	—	45.0 ~60.0	10以上	—						
	60~80	—	60を越え 80以下	—	40.0	30以上	—						
	80~100	—	80を越え 100以下	—	~55.0	100以上	—						
	100~120	—	100を越え 120以下	—	35.0		—						
	120~150	—	120を越え 150以下	—	~50.0		—						
	150~200	—	150を越え 200以下	—	30.0 ~45.0	—	—				70以上	—	210以上
	200~300	—	200を越え 300以下	—	—	—	—				1.0 以下	—	200以上
ブローンアスファルト	0~5	—	0以上 5以下	—	130.0 以上	—	0以上	60以上	99.0 以上	200 以上			
	5~10	4以上	5を越え 10以下	25以下	110.0 以上	—	—						
	10~20	7以上	10を越え 20以下	45以下	90.0 以上	—	1以上						
	20~30	10以上	20を越え 30以下	70以下	80.0 以上	—	2以上						
	30~40	14以上	30を越え 40以下	95以下	65.0 以上	—	3以上						

および $\text{NaNO}_3$ 溶液をアスファルト固化した場合の軟化点，針入度，粘度，比重等を調べた。

#### 4.1 軟化点

ストレートアスファルトのうち40/60，60/80，80/100の3種類を加熱攪拌した場合の加熱温度および加熱時間による軟化点の変化を第2～4図に示す。図から次のようなことがわかる。

- (1) 柔らかいアスファルトの方が軟化点の変化が大きい。
- (2) 加熱温度および加熱時間に比例して軟化点も変化する。
- (3) 加熱温度と加熱時間以外にも軟化点に影響をおよぼす因子がありそうである。

そこで，軟化点変化の最も大きい80/100を用いて $223^\circ\text{C}$ で7時間（オイルバス使用）静置したが軟化点にはほとんど変化がなかった。このことから，軟化点が変化する原因は，かきまぜによる空気酸化であろうと思われる。ブローンアスファルトは，原油の蒸留残渣油に $230\sim 270^\circ\text{C}$ の温度で空気を吹き込み，酸化，脱水素重合，縮合反応を起こさせたものである。したがって，ストレートアスファルトを加熱かきまぜした時に起こる軟化点の変化は，ブローンアスファルトの製造と同様の反応によるものであろう。このことから，かきまぜ条件が物性へおよぼす影響は，かなり大きなファクターとなる。しかしかきまぜ条件は，回転数，翼の形状，液量，液の粘度等によって変わるので一定にすることが困難である。したがって，アスファルトおよび $\text{NaNO}_3$ -アスファルト混合物の軟化点におよぼす加熱温度，加熱時間， $\text{NaNO}_3$ 含有量の影響は，かきまぜ条件を一定にすることが困難なため，その影響につつまれてしまい定量的な評価をすることができない。定性的には， $\text{NaNO}_3$ 含有量の多い試料ほど軟化点は高くなっている。

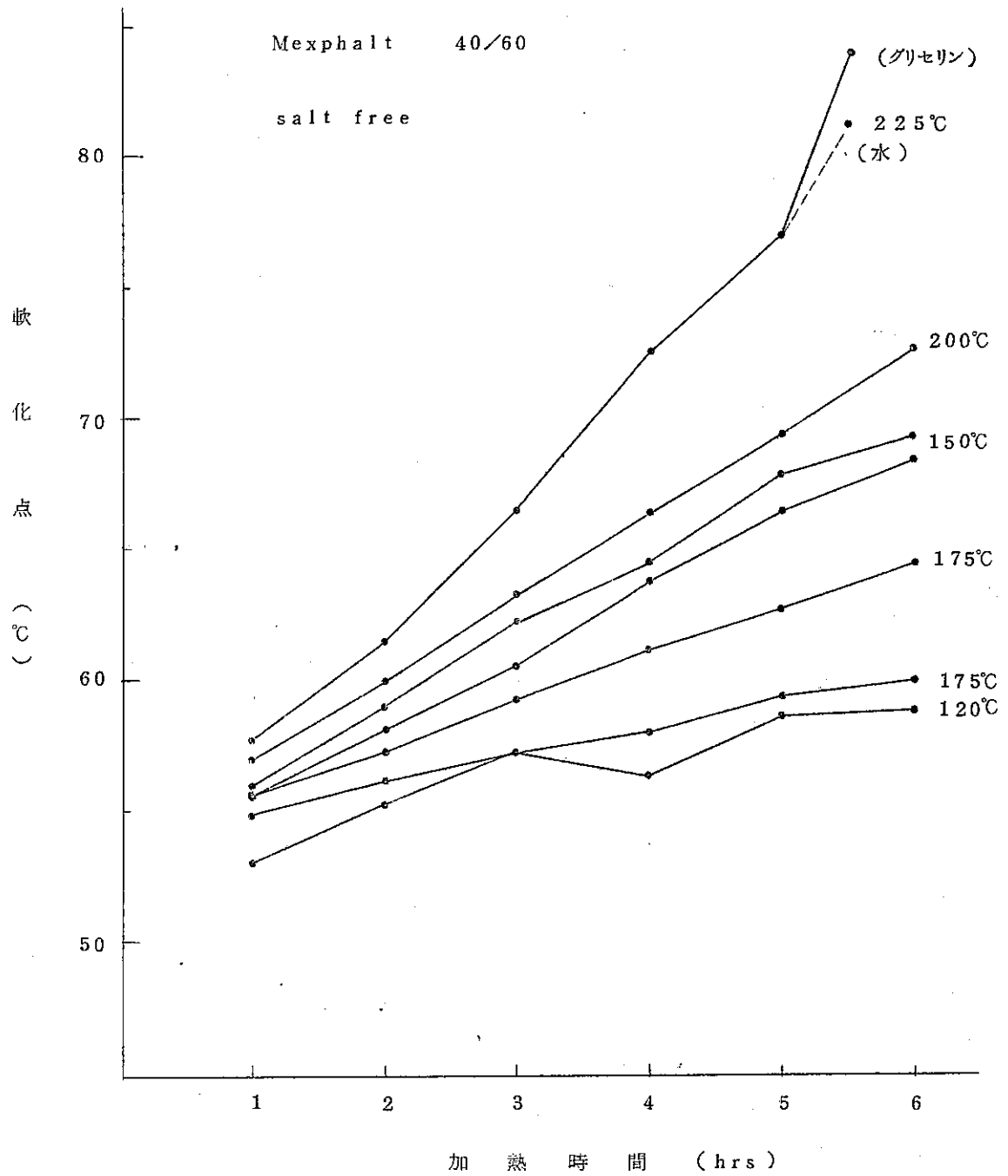
後述するように，軟化点と浸出率との間には，関連がありそうに思われる。

#### 4.2 針入度

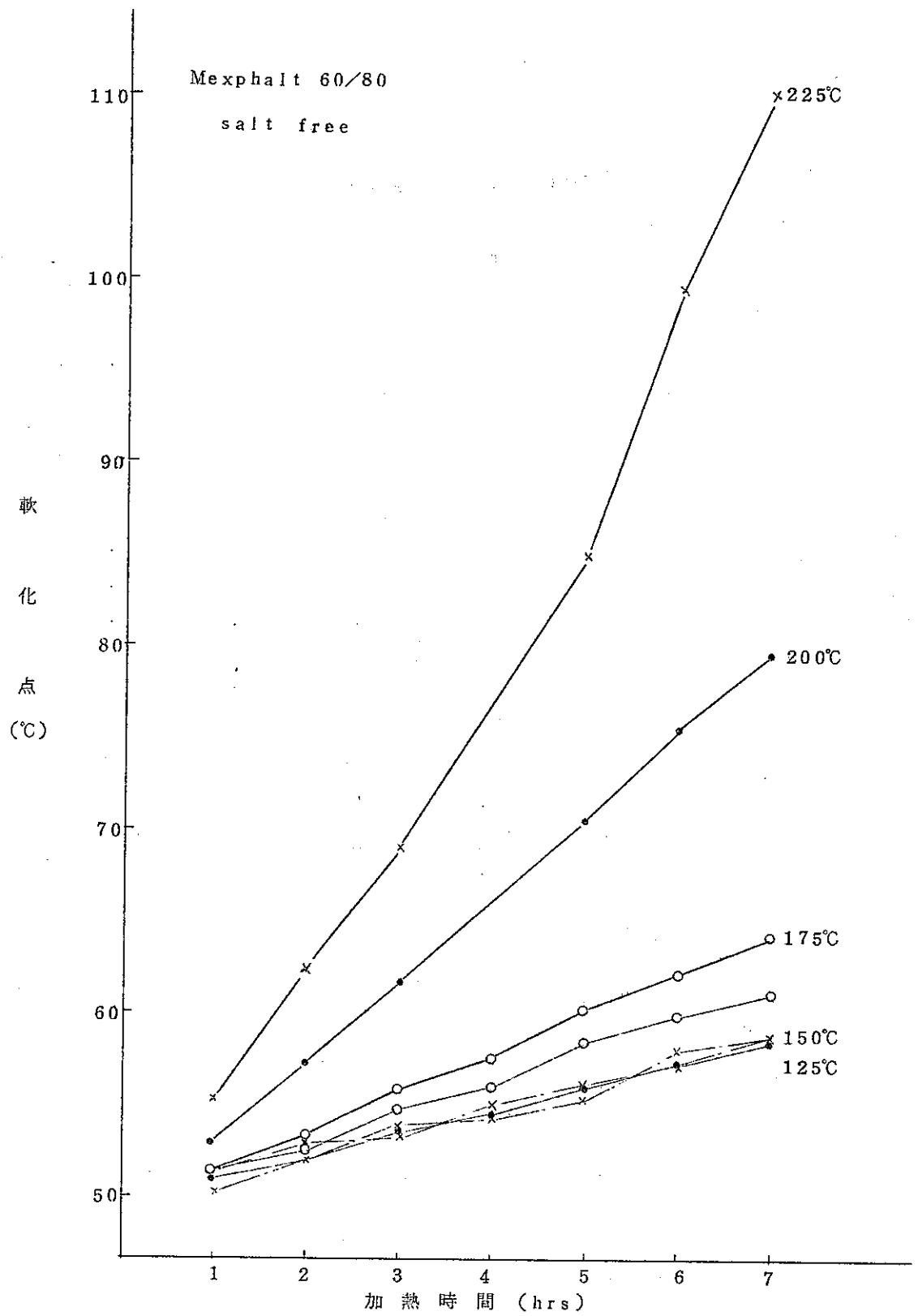
アスファルトの加熱温度による針入度の変化を第5図に示す。このグラフで60/80，80/100は7時間加熱，40/60は6時間加熱したものである。第5図は，各 $\text{NaNO}_3$ 含有量の試料を $200^\circ\text{C}$ で調整したものの針入度である。 $\text{NaNO}_3$ 含有量による影響は見られない（第6図）。なお， $\text{NaNO}_3$ を含むアスファルト固化物は，熱膨張が大きいため冷却固化した時，試料表面の真中が大きくくぼみ正確な針入度の測定が困難であった。

#### 4.3 比重

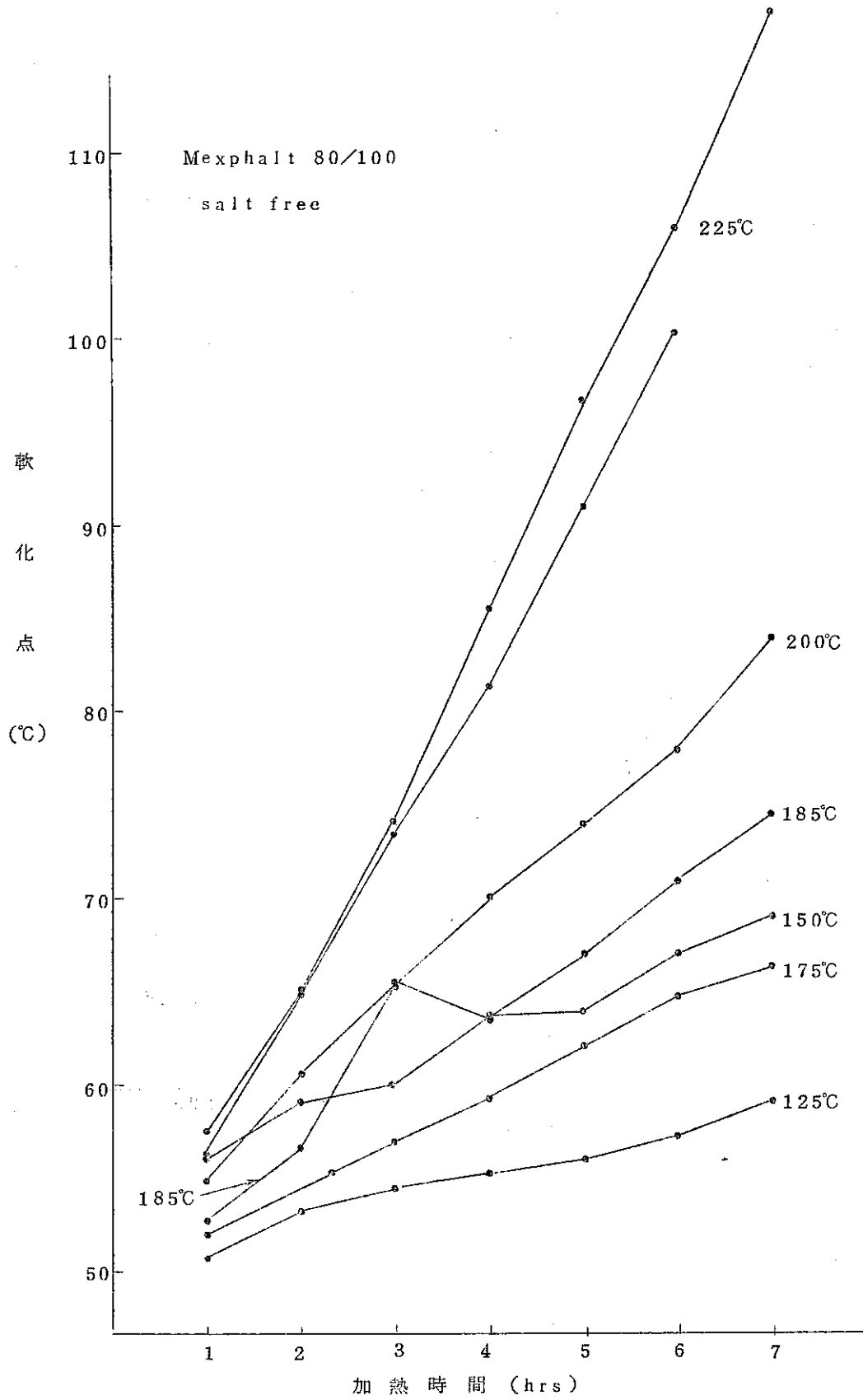
アスファルトの比重は約1.0～1.1位であるが， $\text{NaNO}_3$ を含むアスファルト固化物の比重をハーバード比重びん法により測定した。試料の温度が低くなると粘度が高くなり，空隙が生ずるため見掛け比重が小さくなる。アスファルトの種類による差はないので，概



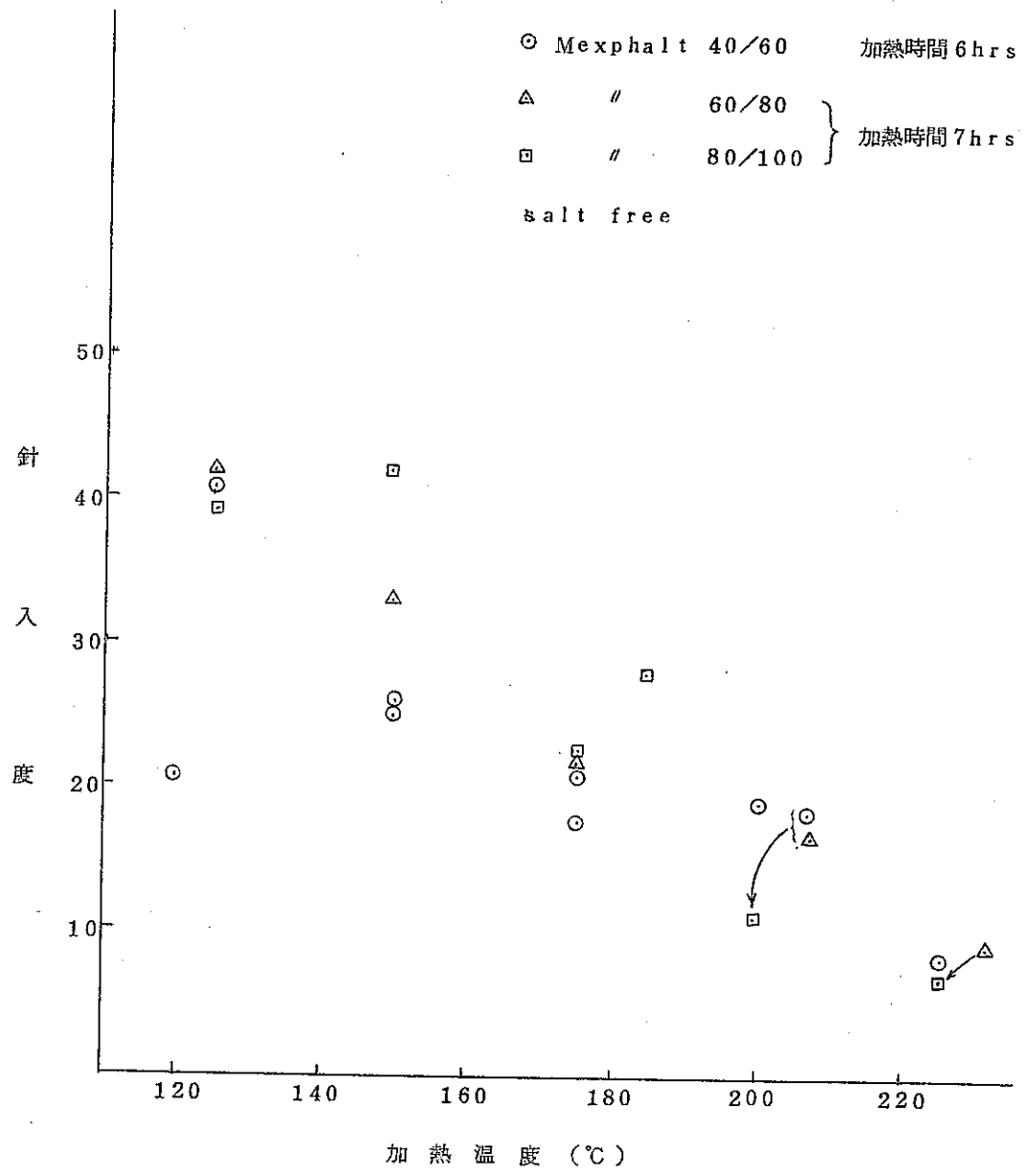
第2図 加熱時間および加熱温度と軟化点の関係



第3図 加熱時間および加熱温度と軟化点の関係

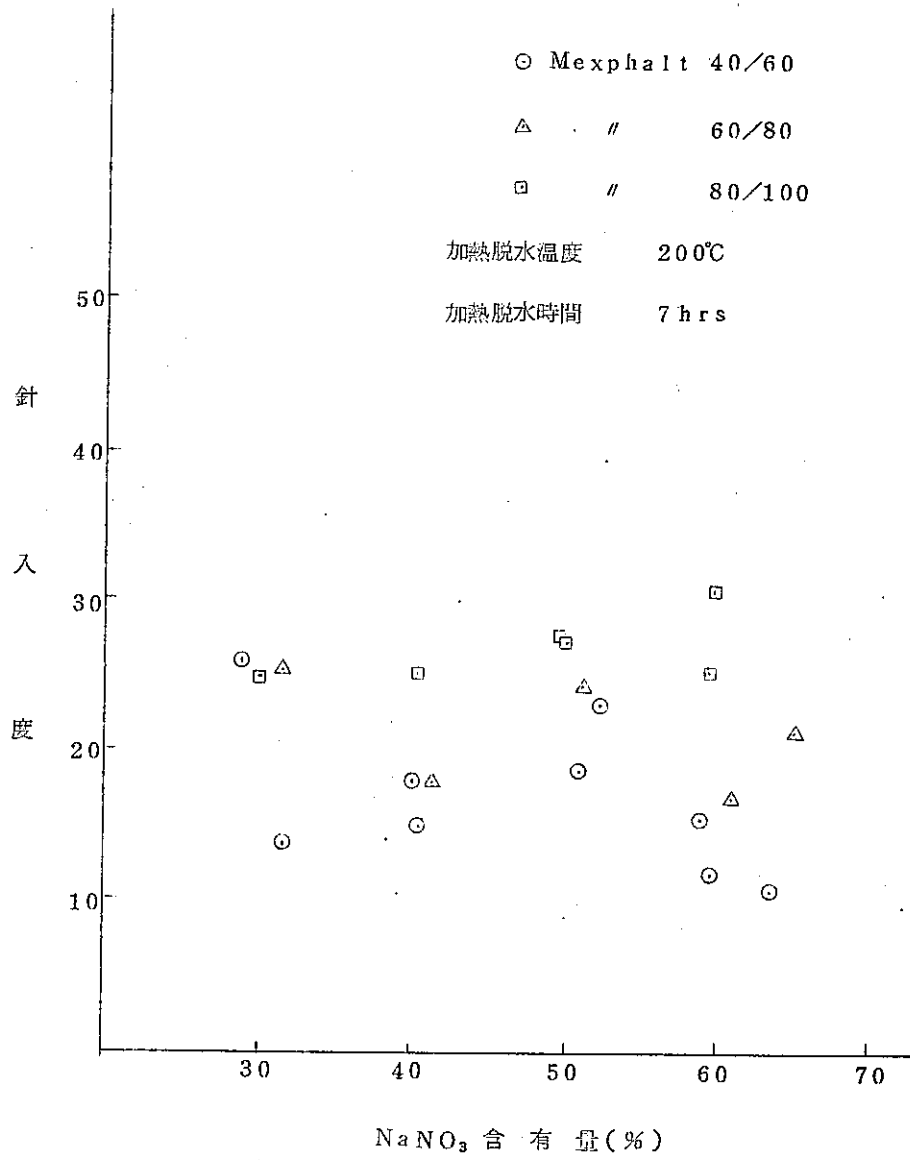


第4図 加熱時間および加熱温度と軟化点の関係



第5図 加熱温度と針入度の関係





第6図 NaNO<sub>3</sub> 含有量と針入度の関係

略の $\text{NaNO}_3$ 含有量と比重との関係を示すと第7図のようになる。

#### 4.4 粘 度

粘度の測定は、B型回転粘度計を用いておこなった。アスファルトの粘度は温度によって大きく変わるが、アスファルトの熱伝導性が悪いので温度が均一にならず温度の測定精度がかなり悪い。粘度-温度の関係を第8図に示す。粘度は加熱かきまぜによる空気酸化でかなり高くなるのが分かる。225℃に7時間静置加熱したアスファルトの粘度は、軟化点と同様にほとんど変わらなかった。 $\text{NaNO}_3$ の影響は明確ではない。

#### 4.5 その他

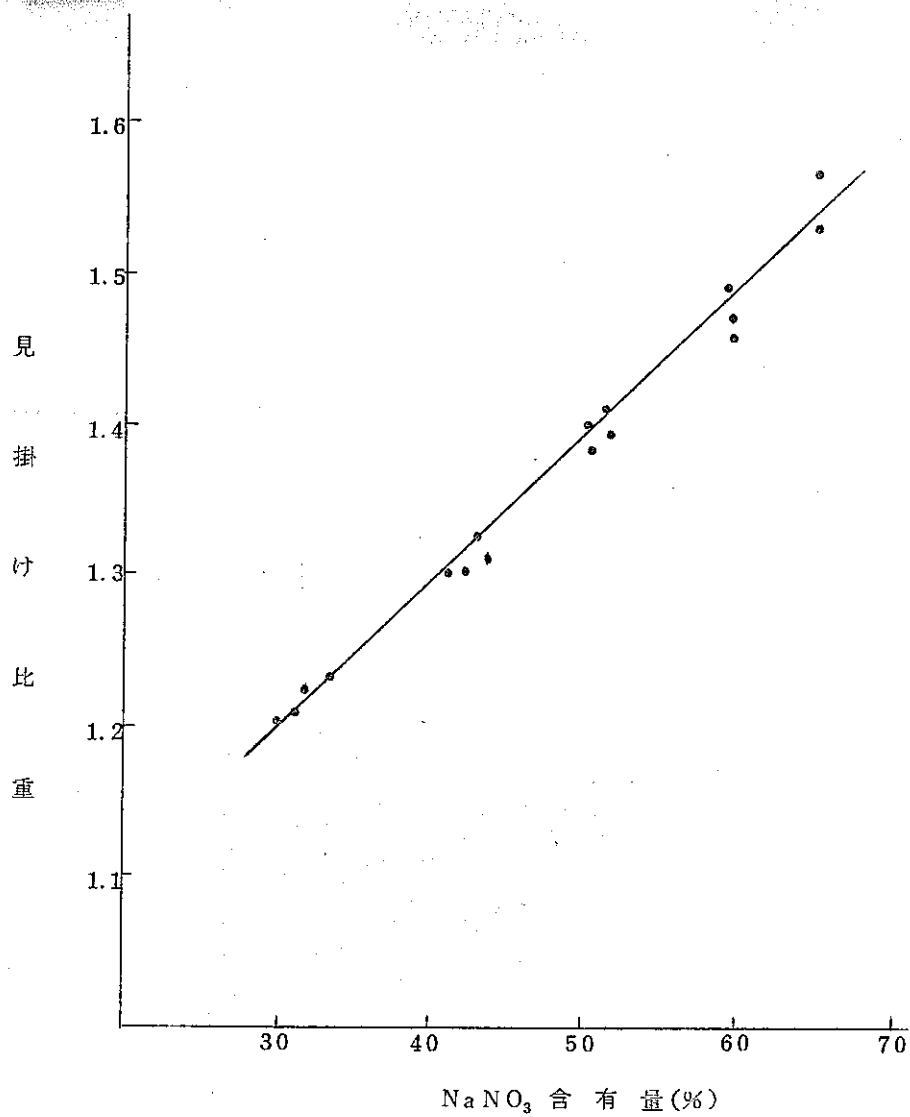
アスファルト混合物を21mmφ×15mmの円筒形に成形し、室内に放置して状態の変化を観察した。この試料には、 $\text{NaNO}_3$ 結晶の析出、変形等が見られた(写真1~3)。室内の温度は夏季に35℃位まで上昇していると思われる。軟化点が70℃以下のものは、ほぼ平板状に変形している。また、 $\text{NaNO}_3$ 含有量60%以上のものはほぼ原形を保っているが大きな $\text{NaNO}_3$ 結晶が析出している。これは空気中の湿度が関係しているものと思われる。湿度の高い時には試料の表面に水滴がついており、湿度が低くなると結晶が析出してくる。

アスファルト混合物の残留水分の測定は、JIS-K2275に規定されている水分試験法でキシロールを溶剤としておこなったが、水分は検出されなかった。この時用いた試料は、 $\text{NaNO}_3$ 60%、200℃、7時間加熱混合のものであり、この条件では水分はすべて蒸発されアスファルト中には残留しないものと思われる。

充分に加熱混合されたアスファルト- $\text{NaNO}_3$ 混合物を一定温度で一定時間静置した場合、アスファルトと $\text{NaNO}_3$ の比重の差による $\text{NaNO}_3$ の沈降状態を調べるため、次の条件で試験をおこなった。アスファルト40/50、 $\text{NaNO}_3$ 混合率60%、加熱温度200℃、加熱時間7時間で作られたアスファルト混合物を100mlメスシリンダーに入れ、165℃に保たれたオイルバス中で6時間静置し冷却後、35、60、90ml附近より試料を採取し、この試料を四塩化炭素可溶分試験方法により測定した。この結果、各々の可溶分(不溶分)は90ml附近39%(61%)、60ml附近38.6%(61.4%)、35ml附近37%(63%)とわずかながら沈降が認められたにすぎなかった。

#### 5. アスファルト固化体の浸出試験

アスファルト固化処理試験により得られた生成物の有効性を調べるために浸出試験がおこなわれる。この試験は、一定の形に成形(一定表面積、体積)した試料をポリエチレン製



第7図 NaNO<sub>3</sub> 含有量と見掛け比重の関係

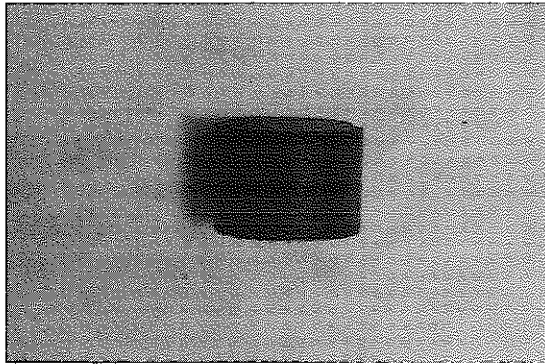


写真1 アスファルト-NaNO<sub>3</sub>混合物(成形直後)

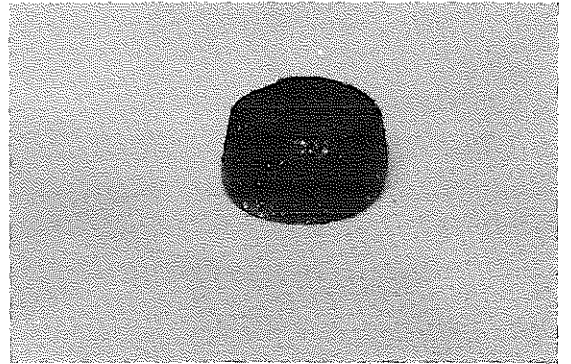


写真2 室内に6ヶ月間放置後の状態

アスファルト-80/100, NaNO<sub>3</sub>含有量-40%  
混合温度-225℃, 軟化点-76.5℃  
白色点状の部分は析出したNaNO<sub>3</sub>の結晶

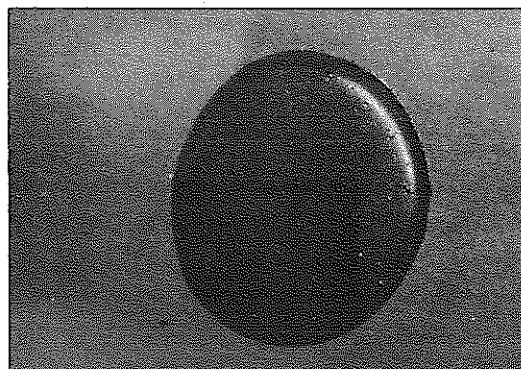
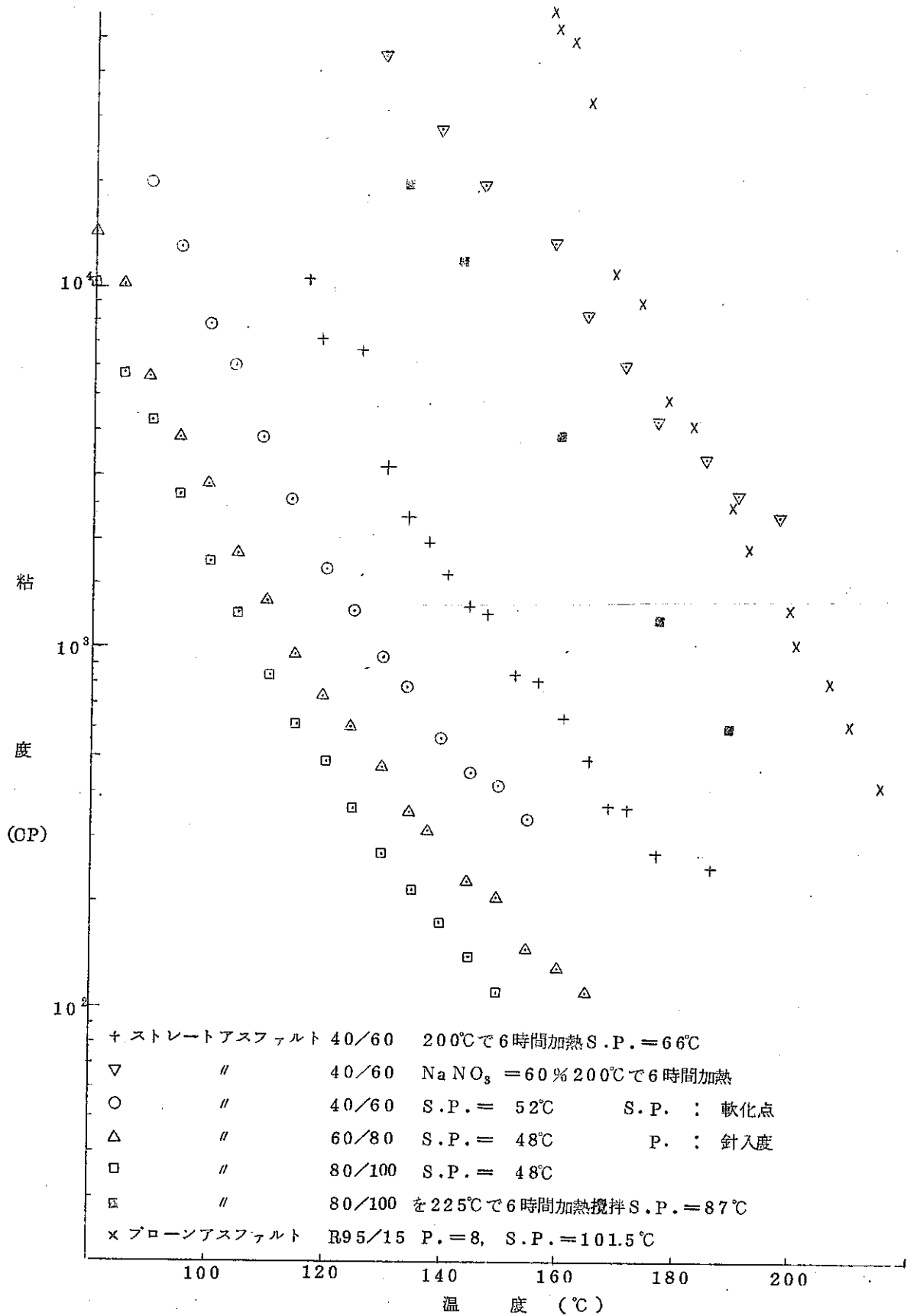


写真3 室内に6ヶ月間放置後の状態(平板状に変形)

アスファルト-60/80, NaNO<sub>3</sub>含有量-40%  
混合温度-175℃, 軟化点-55.0℃

SN841-71-06



第8図 温度と粘度の関係

等の容器中で一定量の地下水、海水、蒸留水等に浸漬させ、経時変化と共に浸出する放射能（コールドの場合はナトリウムイオン等）を調べ、生成物の有効性を評価する一方法である。

この試験では、おもにアスファルトの種類、加熱温度、塩濃度および軟化点と浸出速度の関係を調べることを目的とした。試験はすべてコールドでおこなった。

### 5.1 浸出試験に用いた試料

アスファルトの種類	Mexphalt 40/60, 60/80, 80/100
混合した塩の種類	硝酸ナトリウム, (500 g/l)
塩の混合率	30, 40, 50, 60, 65%
加熱温度	175, 200, 225°C
加熱時間	約7時間

### 5.2 試験条件および方法

固化処理試験で得られた生成物を溶融状態のまま、あらかじめ準備されたポリエチレン製チューブ（重量既知）に注入し、試料を作成する。この時使用したポリエチレン製チューブは、外径24 mm、内径18 mm、高さ20 mm、（写真4）のもので試料の表面積は5.09 cm<sup>2</sup>であった。試料は放置したまま室温まで冷却し重量を測定する。浸出液<sup>※</sup>（イオン交換水）100 mlを満した200 mlポリエチレン容器（フタ付）に試料を入れ、静止状態のまま放置し、一定時間毎に浸出液を交換する。この時、サンプリングを同時におこない、浸出液中のナトリウムイオン濃度を原子吸光分析法により求め、浸出速度、浸出率を算出した。

なお、浸出速度は次式により算出した。

$$\text{浸出速度} = \frac{\text{浸出液中のNa}^+ \text{量 (g)} \times \text{試料の重量 (g)}}{(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}, \text{day}^{-1}) \text{試料中のNa}^+ \text{量 (g)} \times \text{試料の表面積 (cm}^2) \times \text{浸出時間 (day)}}$$

※ 浸出液として、当初は水道水を使用したが生産水中のナトリウムイオン（23～27 ppm）が試験結果に影響をおよぼすため、浸出液はイオン交換水を用いることとした。

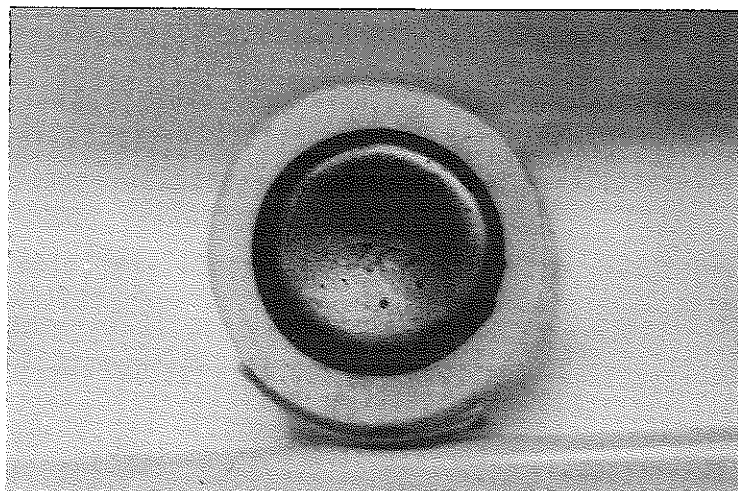


写真4 浸出試験用試料

### 5.3 試験結果および考察

軟化点と浸出率の関係を第9図に示す。

この図から軟化点と浸出率の関係は、軟化点が高いほど浸出率も低いことがわかる。NaNO<sub>3</sub>含有量については、この図から含有量の違いが浸出率に影響をおよぼしているかどうかは明らかでないが、他の試験結果をあわせて考慮するとNaNO<sub>3</sub>含有量60%以上の試料は60%以下のものに比べて浸出率は高いように思われる。60%以下の試料については、NaNO<sub>3</sub>含有量だけでなく軟化点等の因子が関与するため、この結果からだけで判断することは難しい。

NaNO<sub>3</sub>含有量と浸出速度の関係を第10図に示す。

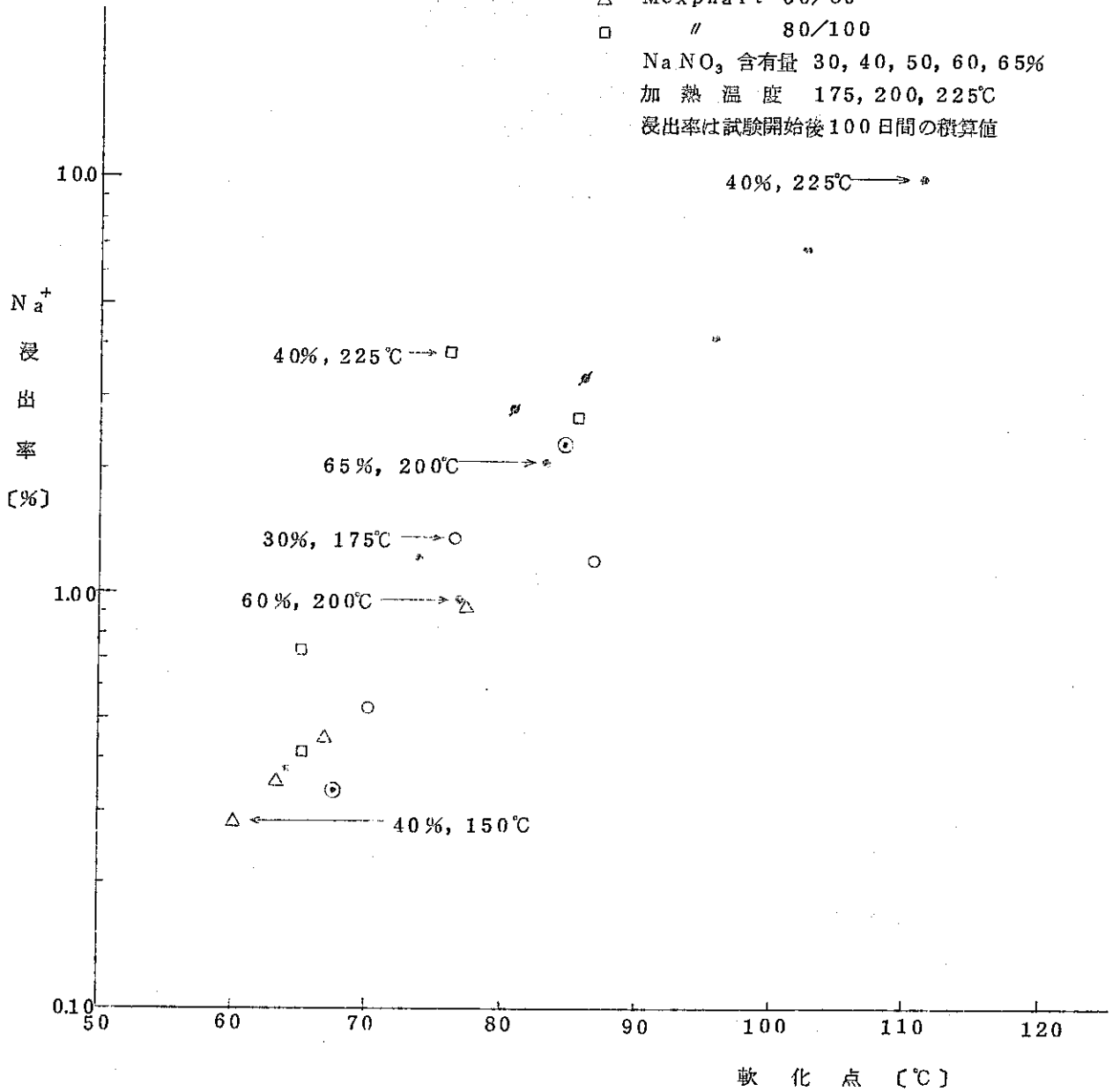
この図から、試験開始直後は明らかにNaNO<sub>3</sub>含有量の高い方が浸出速度が大きいことがわかるが、約10～100日の範囲では、含有量に関係なく $10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ のオーダーとなっている。また、一度小さくなった浸出速度が約60日附近を境として再び大きくなっていることがわかる。

固化生成物を長時間水中に浸漬させておくと程度の差こそあれ膨潤現象が生じ、浸出液と接触する生成物表面が海綿状となっていること、また試料によっては大きく変形していることが試験から観察されている。この膨潤の原因は明らかではない。特に膨潤および変

$$\text{Na 浸出率 (\%)} = \frac{\text{浸出された全ナトリウム量}}{\text{試料中の全ナトリウム量}} \times 100$$

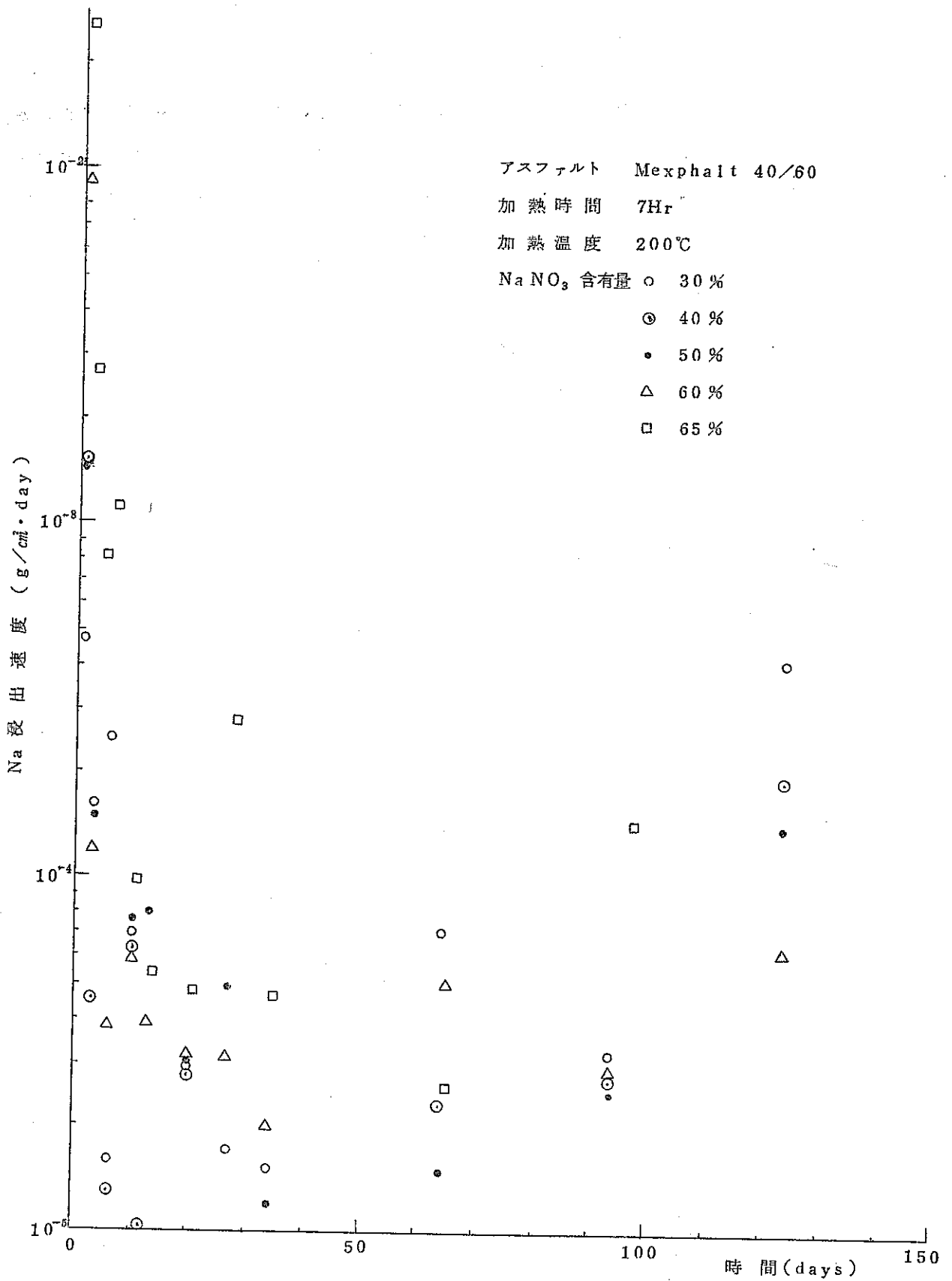
- 30%, 200°C
- 40%, "
- \* 40%, 175°C
- ⊙ 50%, 200°C
- △ Mexphalt 60/80
- " 80/100

NaNO<sub>3</sub> 含有量 30, 40, 50, 60, 65%  
 加熱温度 175, 200, 225°C  
 浸出率は試験開始後100日間の積算値



第9図 軟化点と浸出率の関係





第10図 NaNO<sub>3</sub> 含有料と浸出速度の関係

形の大きなものを写真5および6に示す。

この浸出試験について他の報文をみると、試験開始後一度小さくなった浸出速度が、ある時点で大きくなり再び小さくなってほぼ平衡状態となっている。この速度増加の原因は明らかではないが、いずれにしても試験期間がかなり長期にわたるものであり、この試験も今後かなり長期にわたり継続しなければならぬと思われる。

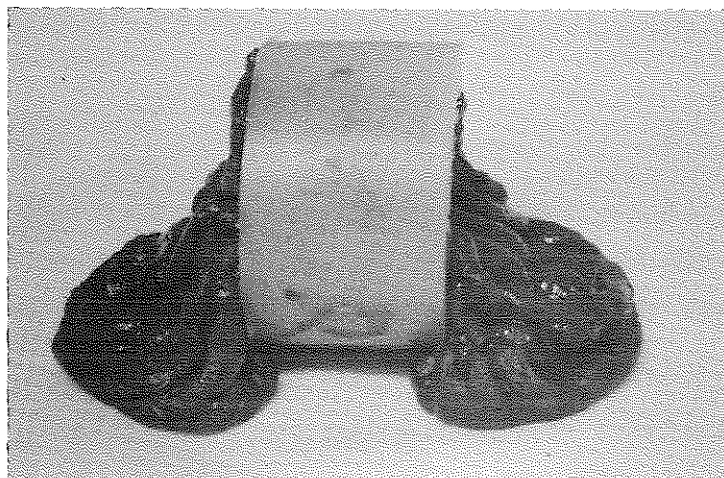


写真5 浸出試験後、極端に変形した試料の例  
浸出時間 —150日、(10日で大きな変形を確認)  
アスファルト—60/80,  $\text{NaNO}_3$  含有量—40%  
混合温度— $-175^\circ\text{C}$ , 軟化点— $55.0^\circ\text{C}$

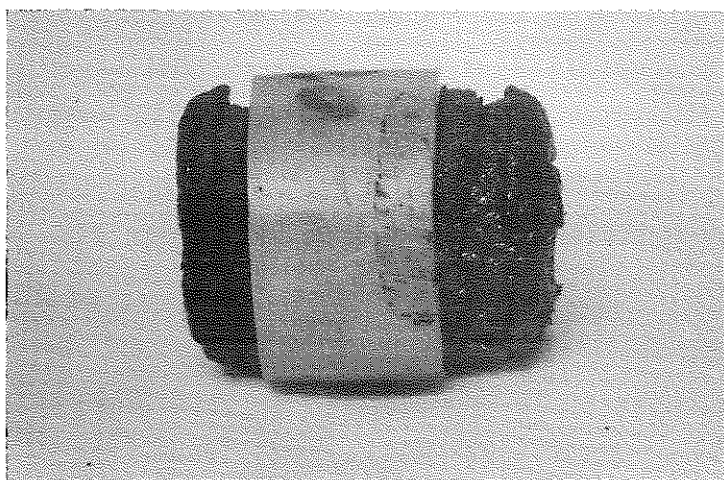


写真6 浸出試験後、極端に膨潤した試料の例  
浸出時間—170日(35日で大きな膨潤を確認)  
アスファルト—80/100,  $\text{NaNO}_3$  含有量—60%  
混合温度— $200^\circ\text{C}$ , 軟化点— $76.3^\circ\text{C}$

6 放射性廃棄物のアスファルト固化に関する文献

○モル (ベルギー)

1. P. Dejonghe, N. Van de Voodre, Fixation of low and intermediate active concentrates by inclusion in low melting inert media. Report of the second working meeting on fixation of radioactivity in stable solid media. TID-7613 P251-269 1960
2. P. Dejonghe, N. Van de Voodre, J. Pyck, A. Stynen, Insolubilisation of radioactive concentrates by asphalt coating. April 1, 1961, to March 31, 1963 EURAEC-695. 1963
3. P. Dejonghe, L. Beatsle, N. Van de Voodre, W. Maes, P. Staner, J. Pyck, J. Souffriau, Asphalt conditioning and underground storage of concentrates of medium activity. Proc. 3rd UN Conf. PUAE, 1964. 28/A/774
4. N. Van de Voodre, P. Dejonghe, Insolubilisation de concentrats radioactifs par enrobage de bitume. IAEA, Vienna 1966, STI/PUB/116 SM-71/4 (ORNL-tr 1431)
5. W. Hild, H. Eschrich, R. Garcia Galan, R. Gulbrandsen, K. Tallberg. The homogeneous incorporation of Eurochemic medium level waste and high enriched waste concentrate into bitumen. ETR-264 1970

○フランス

6. Rodier, J., Scheidhauer, J., Conditionnement des dechets radioactifs par le bitume. CEA n° 1992 1961
7. Rodier, J., Lefillatre, G., Scheidhauer, J., Enrobage par le bitume des boues radioactives de la Station de Traitement des Effluents du Centre de Marcoule. CEA n° 2331 (ORNL-tr202) 1963
8. Rodier, J., Lefillatre, G., Scheidhauer, J., Enrobage par le bitume des boues radioactives. Energie Nucl. 6 2 (mars-avril). 1964
9. Rodier, J., Alles, M., Auchapt, P., Lefillatre, G., Solidification des boues radioactives par le bitume. IAEA, Vienna STI/PUB/116 SM-71/52 (ORNL-tr 1432) 1966
10. Rodier, J., Lefillatre, G., Estournel, R., The prospects of bitumen as

- coating material for radioactive waste. Symposium on the solidification and long-term storage of highly radioactive wastes. February 14-18, 1966 Conf-660208 P375-386
11. Lefillatre, G., Cudel, Y., Rodi, L., Etude de différents traitements de décontamination sur des concentrats d'évaporation. CEA-R-3554 1968
  12. Rodier, J., Lefillatre, G., Rodi, L., Cudel, Y., Enrobage des concentrats d'évaporation par le bitume. CEA-R-3632 1968
  13. Renée Tabardel-Brian, J. Rodier, G. Lefillatre, Essais d'irradiation de bitume et d'enrobes bitumineux. CEA-R-3730 1969
  14. Rodier, J., Lefillatre, G., Seyfield, P., Installation pilote d'enrobage par le bitume de concentrats de haute activite. CEA-R-3734 (ORNL-tr 2183) 1969
  15. Lefillatre, G., Rodier, J., Hullo, R., Cudel, Y., Rodi, L., Utilisation d'un évaporateur a couche mince pour l'enrobage par le bitume de concentrats radioactifs. CEA-R-3742 1969
  16. Rodier, J., Lefillatre, G., Etude de la radioactive de blocs d'enrobes bitumineux en provanance d'un atelier d'enrobage industriel. CEA-R-3743 1969
  17. Rodier, J., Marichal, M., Benoit, R., Niezborala, F., LeBauhellec, J., Etude de la diffusion de la radioactive des verres et enrobes bitumineux. CEA-R-3751 1969
  18. Fernandez, N., Enrobage bitumineux des boues de traitement des effluents radioactifs. Energie Nucléaire vol. 11 No. 6, aout-septembre 1969
  19. Rodier, J., Rodi, L., Lefillatre, G., Cudel, Y., La solidification des dechets radioactifs par le bitume. CEA-R-3982 1970
- アメリカ
20. R. E. Blanco, F. L. Parker, et al. Waste Treatment and Disposal. Quarterly Progress Report. Nov. 1963-Jan. 1964 ORNL-TM-830 1964
  21. F. L. Culler, et al. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1964 ORNL-3627

22. R. E. Blanco, H. W. Godbee, et al. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1965 ORNL-3830
23. R. E. Blanco, H. W. Godbee, et al. Waste Treatment and Disposal Semi-annual Progress Report for Period July-December 1964 ORNL-TM-1081
24. J. H. Goode, Fixation of intermediate level radioactive waste in asphalt: Hot-cell tests. ORNL-TM-1343 1965
25. R. E. Blanco, W. Davis, Jr. H. W. Godbee, L. J. King, J. T. Roberts, W. C. Yee, G. J. Alkire, E. R. Irish, B. W. Mercer, Recent developments in treating low and intermediate-level radioactive waste in the United States of America. IAEA Vienna 1966 STI/PUB/116 SM-71/26
26. A. M. Rom, Development of the waste-asphalt process on a semiworks scale: Design and installation of evaporation equipment in Building 4505. ORNL-TM-1637 1966
27. A. M. Rom, Incorporation of intermediate-level waste in asphalt: Preliminary design and cost estimate of a full-scale plant for ORNL. ORNL-TM-1697 1967
28. R. E. Blanco, H. W. Godbee, et al. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1967 ORNL-4145
29. H. W. Godbee, R. E. Blanco, E. J. Frederick, W. E. Clark, N. S. S. Rajan, Laboratory development of a process for incorporation of radioactive solutions and slurries in emulsified asphalt. ORNL-4003 1967
30. R. E. Blanco, H. W. Godbee, et al. Waste Treatment and Disposal, Quarterly Progress Report for Period July-December 1966 ORNL-TM-1887
31. J. H. Goode, J. R. Flanary, Fixation of intermediate-level radioactive waste concentrates in asphalt: Hot-cell evaluation. ORNL-4059 1968
32. R. E. Blanco, H. W. Godbee, et al. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1968 ORNL-4272
33. R. E. Blanco, H. W. Godbee, et al. Waste Treatment and Disposal Quarterly Progress Report for Period July-December 1967 ORNL-TM-2294
34. H. W. Godbee, J. H. Goode, R. E. Blanco, Development of a process for incorporation of radioactive waste solution and slurries in emul-

sified Asphalt. Environmental Science and Technology-2(11)P1034-1040 1968

35. W. Davis, Jr, C. L. Fitzgerald, H. E. Soard, Maximum temperature rise in cylinders containing intermediate-level and high-level solidified radioactive wastes. ORNL-4361 1969
36. H. W. Godbee, C. L. Fitzgerald, J. O. Blomeke, R. E. Blanco, Diffusion of radioisotopes through waste solids. Trans. Amer. Nucl. Soc., 12, 29 (1969)
37. R. E. Blanco, H. W. Godbee, E. J. Frederick, Incorporating industrial wastes in insoluble media. Chem. Eng. Progr. vol. 66, No. 2 1970
38. C. L. Fitzgerald, H. W. Godbee, R. E. Blanco, W. Davis, Jr, The feasibility of incorporating radioactive wastes in asphalt or polyethylene. Nucl. Appl. & Tech. vol 9 1970

○イギリス

39. R. H. Burns, G. W. Clare, Bitumen incorporation - AERE operational experiences. AERE-M 2143 1968
40. R. H. Burns, G. W. Clare, Types of waste soluble for incorporation in bitumen. AERE-M 2144 1968

○ドイツ

41. W. Kluger, H. Krause, O. Netwick, Fixing of radioactive residues in bitumen. KFK-1037 1969
42. H. Krause, Decontamination department, Annual Report 1968 KFK-1030 (ORNL-tr 2361) 1970

○日本

43. 株式会社荏原製作所

「放射性スラッジの固形化に関する試験研究」成果報告書 昭和42年度原子力平和利用試験研究 42原委 第1644号

44. 能見光彦, 佐野勝典 「放射性スラッジの固形化について」 F&PIG 第54号 1969

-9

○その他

45. Treatment of low-and intermediate-level radioactive waste concen-

SN841-71-06

trates. IAEA, Vienna, 1966 Technical reports series No. 82-STI  
/DOC/10/82

46. Bituminization of radioactive wastes. IAEA, Vienna, 1970 Tech-  
nical reports series No. 116-STI/DOC/10/116